

## ⑫ 公開特許公報(A) 平2-69658

⑤ Int. Cl.<sup>5</sup>

G 01 N 31/00

識別記号

GAK T

庁内整理番号

8506-2G

⑬ 公開 平成2年(1990)3月8日

審査請求 未請求 請求項の数 1 (全4頁)

⑭ 発明の名称 揮発性ルテニウムの測定方法

⑮ 特 願 昭63-221980

⑯ 出 願 昭63(1988)9月5日

⑰ 発 明 者 萩 原 実 東京都千代田区大手町2丁目2番1号 石川島播磨重工業株式会社

⑱ 出 願 人 石川島播磨重工業株式会社 東京都千代田区大手町2丁目2番1号

⑲ 代 理 人 弁理士 志賀 正武 外2名

## 明 細 書

## 1. 発明の名称

揮発性ルテニウムの測定方法

## 2. 特許請求の範囲

試料ガスを第1のフィルタで濾過してRuO<sub>2</sub>を捕捉し、ついでRuO<sub>2</sub>を除去した状態の試料ガスに還元剤を添加してRuO<sub>2</sub>をRuOに還元した後、該還元ガスを第2のフィルタに送り込んでRuO<sub>2</sub>を捕捉し、第2のフィルタで捕捉されたRuO<sub>2</sub>量を測定することにより試料ガス中のRuO<sub>2</sub>の量を測定することを特徴とする揮発性ルテニウムの測定方法

## 3. 発明の詳細な説明

[ 産業上の利用分野 ]

この発明は揮発性ルテニウムの測定方法に係わり、特に高放射性廃液を処理した際などに生じるオフガス中のルテニウム量を測定する方法に関する。

[ 従来の技術 ]

原子力発電所の使用済み核燃料再処理施設等で発生する高放射性廃液中には、核分裂生成物で希少金属である放射性ルテニウムが酸素化合物等の形で含有されているが、この高放射性廃液にガラス固化処理等の処理を施す際に、ルテニウム化合物のうち揮発性を有するRuO<sub>2</sub>や、固体状のRuO<sub>2</sub>がオフガス中に移行するので、オフガス中からのルテニウムの除去処理が施されている。

[ 発明が解決しようとする課題 ]

ところが上記オフガス中に含有されるルテニウム化合物のうち、RuO<sub>2</sub>は揮発性であるので、固体粉末状のRuO<sub>2</sub>のように容易にその量を測定することができなく、オフガス中に含有される揮発性ルテニウムの測定方法の提供が望まれていた。

この発明は上記課題を解決するためになされたもので、揮発性ルテニウムの測定方法を提供することを目的としている。

[ 課題を解決するための手段 ]

この発明は、試料ガスを第1のフィルタで濾過してRuO<sub>2</sub>を捕捉し、ついでRuO<sub>2</sub>を除去した状

態の試料ガスに還元剤を添加して $\text{RuO}_2$ を $\text{RuO}$ に還元した後、該還元ガスを第2のフィルタに送り込んで $\text{RuO}_2$ を捕捉し、第2のフィルタで捕捉された $\text{RuO}_2$ 量を測定することにより試料ガス中の $\text{RuO}_2$ の量を測定することを解決手段とした。

#### [作用]

試料ガス中に含有される $\text{RuO}_2$ は固体粒子状であるので、試料ガスを第1のフィルタで濾過することにより $\text{RuO}_2$ を捕捉する。ついで第1のフィルタで $\text{RuO}_2$ が除去された試料ガスに還元剤を添加し、第1のフィルタで捕捉不可能であった揮発性の $\text{RuO}_2$ をフィルタ捕捉可能な固体粒子状の $\text{RuO}_2$ とし、これを第2のフィルタで捕捉する。第2のフィルタで捕捉された $\text{RuO}_2$ を測定することにより試料ガス中の揮発性ルテニウムの含有量を測定することができる。

#### [実施例]

以下、この発明を詳しく説明する。

第1図はこの発明のルテニウム化合物の含有量測定方法を実施する際に好適に用いられる装置の

中を流動する試料ガスの流量を測定することにより、試料ガス中のルテニウム化合物の濃度が算出できるようにするものであって、プロア5は母管1内を移送されるオフガス等から試料ガスをサンプリグラインS中に分流するための負圧源となるものである。還元剤添加装置6は第1のフィルタ2で $\text{RuO}_2$ が除去された試料ガスに $\text{NO}$ や $\text{CO}$ 等の還元剤を添加するための装置である。第1および第2のフィルタ2、3にそれぞれ取り付けられた計測機器7、7は、第1および第2のフィルタ2、3で捕捉された $\text{RuO}_2$ の量を計測するためのものであって、放射性 $\text{RuO}_2$ が放射する $\beta$ 線、 $\gamma$ 線を計測することにより、その量が計測可能なガイガー=ミュラー計数管やシンチレーションカウンタなどの放射線量測定装置等からなる。

このようなサンプリグラインSを用いて試料ガス中のルテニウム化合物の含有量を測定するには、以下の各工程による。

#### ① $\text{RuO}_2$ の捕捉。

試料ガス中には、 $\text{RuO}_2$ と $\text{RuO}$ との2種のル

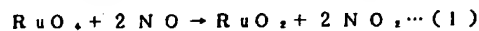
一例を示したものである。第1図中、符号1は高放射性廃液を処理した際に生じたオフガス等を移送する母管である。この母管1内で移送されるオフガスの一部は、母管1から分岐されて設けられたサンプリグラインSに分流され試料ガスとして採取される。サンプリグラインSはルテニウム化合物の含有量の測定を行うためのものであって、第1のフィルタ2および第2のフィルタ3と、流量計4と、プロア5とを試料ガスの流れに対して直列に配し、第1のフィルタ2と第2のフィルタ3との間に還元剤添加装置6を取り付けると共に、上記第1および第2のフィルタ2、3にて捕捉された $\text{RuO}_2$ の量を計測する計測機器7、7がそれぞれ取り付けられてなるものである。

第1のフィルタ2および第2のフィルタ3は共に、試料ガス中に浮遊している微細な塵埃までが捕捉可能ないわゆるHEPAフィルタと呼ばれる高性能フィルタ等からなり、試料ガス中の浮遊する微細な固体粒子状の $\text{RuO}_2$ をも捕捉できるようになっている。流量計4はサンプリグラインS

ルテニウム化合物が含有されているが、 $\text{RuO}_2$ は固体粒子状で浮遊しているのに対し、 $\text{RuO}$ は常温でも非常に揮発しやすい性質から、高放射性廃液の処理時に発生するオフガス中に含有されている場合等には通常気体状となっており、試料ガス中の $\text{RuO}$ は気体状となっている。したがって試料ガスを第1のフィルタ2で濾過すると、固体粒子状で浮遊している $\text{RuO}_2$ のみを捕捉することができる。

#### ② $\text{RuO}$ の $\text{RuO}_2$ への還元。

$\text{RuO}$ は還元剤により容易に還元されて $\text{RuO}_2$ に還元される性質を有するので、上記①工程により固体粒子状の $\text{RuO}_2$ が除去された試料ガスに、 $\text{NO}$ や $\text{CO}$ 等の還元剤を添加して気体状の $\text{RuO}$ を固体粒子状の $\text{RuO}_2$ に還元し、 $\text{RuO}_2$ の捕捉が可能にようにする。たとえば還元剤として $\text{NO}$ を用いれば、(1)式の如き反応を起こしてフィルタによって捕捉可能な $\text{RuO}_2$ に還元される。



#### ③ $\text{RuO}$ から還元された $\text{RuO}_2$ の捕捉。

上記②工程にて揮発性の $RuO_2$ から還元された固体粒子状の $RuO_2$ を上記①工程と全く同様にして捕捉する。

#### ④ $RuO_2$ および $RuO$ の含有量計測。

上記①工程にて第1のフィルタ2上に捕捉された $RuO_2$ の量と、上記②工程を経て $RuO_2$ に還元された後、③工程にて第2のフィルタ3上に捕捉された $RuO$ の量とをそれぞれ計測する。第1および第2のフィルタ2、3に捕捉された $RuO_2$ は共に放射性であるので、たとえば $RuO_2$ が発生する放射線量を、第1および第2のフィルタ2、3にそれぞれ設けられた計測機器7、7によって計測することにより、第1および第2のフィルタ2、3で捕捉された $RuO_2$ の量をそれぞれ個別に計測することができる。

#### ⑤試料中のルテニウム化合物の含有量換算

第2のフィルタ3で捕捉された $RuO_2$ の量は、②工程で用いた還元剤の種類によって、 $RuO_2$ の量に変換される必要がある。上述のように還元剤としてNOを用いた場合には、 $RuO_2$ 還元すると

以上説明したように、この発明の揮発性ルテニウムの測定方法は、試料ガスを第1のフィルタで透過して $RuO_2$ を捕捉し、ついで $RuO_2$ を除去した状態の試料ガスに還元剤を添加して $RuO_2$ を $RuO$ に還元した後、該還元ガスを第2のフィルタに送り込んで $RuO_2$ を捕捉し、第2のフィルタで捕捉された $RuO_2$ 量を測定することにより試料ガス中の $RuO_2$ の量を測定するものであるので、試料ガス中の揮発性ルテニウムの含有量を迅速かつ容易に測定することが可能である。よって、たとえば高放射性廃液の処理等で発生するオフガスのモニタとして用いられればルテニウム化合物の含有量の管理が容易となる。

さらにこの発明の揮発性ルテニウムの測定方法にあっては、試料ガス中に $RuO_2$ と $RuO$ とを共に含有する場合には、その含有量を別々に測定することができるので、各ルテニウム化合物の含有量に適した除去条件等を設定することができるので、高除去率でルテニウム化合物を除去できる。

#### 4. 図面の簡単な説明

同量の $RuO_2$ となるので、第2のフィルタ3で捕捉された $RuO_2$ の量をそのまま $RuO_2$ の量として換算することができるのは言うまでもない。

#### ⑥試料ガスの回収およびオフガスの処理

上記各工程で $RuO_2$ および $RuO$ が除去され、揮発性ルテニウムの含有量が測定された後の試料ガスは、サンプリングラインSから母管1へ戻されて、母管1内を移送されるオフガスと共に図示しない処理装置内でオフガスとして処理される。

上記のような測定方法によれば、試料ガス中の揮発性ルテニウムの含有量を容易にかつ迅速に測定することができ、高放射性廃液処理の際などに発生するオフガス等のモニタとして用いられれば非常に有用である。

さらに試料ガス中に含有される $RuO_2$ および $RuO$ の量をそれぞれ個別測定することができるので、各ルテニウム化合物の含有量に適した除去条件等を設定することができるので効率良く除去を行うことができる。

#### [ 発明の効果 ]

第1図はこの発明の揮発性ルテニウムの測定方法を実施する際に好適に用いられる装置を示した概略構成図である。

- 2…第1のフィルタ、
- 3…第2のフィルタ、
- 6…還元剤添加装置、
- 7…計測機器。

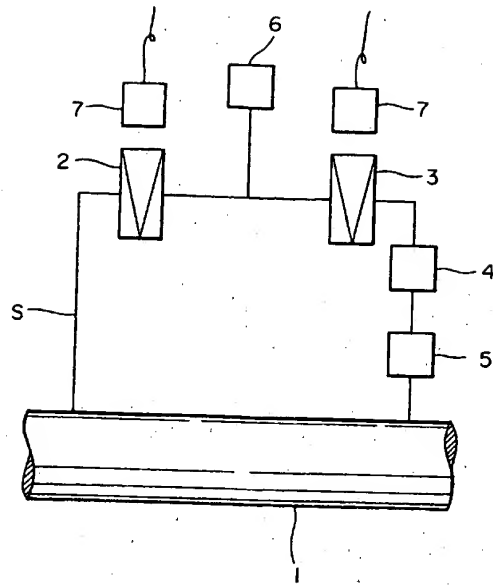
出願人 石川島播磨重工業株式会社

代理人 弁理士 志賀 正

弁理士 渡辺

弁理士 茂谷

第 1 図



L2: Entry 1 of 1

File: DWPI

Mar 8, 1990

DERWENT-ACC-NO: 1990-119765

DERWENT-WEEK: 199016

COPYRIGHT 2002 DERWENT INFORMATION LTD

TITLE: Volatile ruthenium tetra:oxide measurement - by filtering sample gas, adding reducing agent, filtering and measuring obtd. ruthenium di:oxide, etc.

PRIORITY-DATA: 1988JP-0221980- (September 5, 1988)

PATENT-FAMILY:

PUB-NO

PUB-DATE

LANGUAGE

PAGES

MAIN-IPC

JP 02069658 A

March 8, 1990

000

INT-CL (IPC): G01N 31/00

ABSTRACTED-PUB-NO: JP02069658A

BASIC-ABSTRACT:

Measurement of volatile RuO<sub>4</sub> comprises filtering sample gas through first filter to capture RuO<sub>2</sub>; adding reducing agent to obtd. sample gas to reduce RuO<sub>4</sub> in gas to RuO<sub>2</sub>; filtering reduced gas through second filter to capture RuO<sub>2</sub>; and measuring RuO<sub>2</sub> to determine RuO<sub>4</sub> in the sample gas. Pref. a sample gas is fed from off-gas pipe line via sampling line to first filter (e.g. HEPA filter). To gas exiting from first filter, is added reducing agent (e.g. NO) from reservoir, and reduced gas is fed to second filter. Two appts. (e.g. Geiger- or scintillation-counter) measure RuO<sub>2</sub> captured by filters. Flowmeter measures flow rate of sample gas.

USE/ADVANTAGE - Method is used for determining RuO<sub>4</sub> in off-gas produced treatment of highly radioactive waste liq. It makes it possible to determine rapidly and easily RuO<sub>4</sub> content in sample gas.

L1: Entry 1 of 1

File: JPAB

Mar 8, 1990

PUB-NO: JP402069658A

DOCUMENT-IDENTIFIER: JP 02069658 A

TITLE: METHOD FOR MEASURING VOLATILE RUTHENIUM

PUBN-DATE: March 8, 1990

INVENTOR-INFORMATION:

NAME

HAGIWARA, MINORU

COUNTRY

US-CL-CURRENT: 436/84

INT-CL (IPC): G01N 31/00

ABSTRACT:

PURPOSE: To measure the amt. of volatile Ru<sub>4</sub> by filtering a gaseous sample with a 1st filter to capture RuO<sub>2</sub>, and reducing the filtered gas, then capturing the RuO<sub>2</sub> with a 2nd filter.

CONSTITUTION: The offgas transferred in a main pipe 1 is partly diverted to a sampling line S and is drawn as the gaseous sample. The gaseous sample maintained under a negative pressure by a blower 5 is filtered by the 1st filter 2 by which RuO<sub>2</sub> is captured. A reducing agent is added from a reducing agent adding device 6 to the filtered gas to reduce the RuO<sub>4</sub> in the gaseous sample to RuO<sub>2</sub>. The RuO<sub>2</sub> is captured by the 2nd filter 3. The amt. of the RuO<sub>2</sub> captured on the filters 2, 3 is measured by measuring instruments 7, 7 and is converted to the amt. of RuO<sub>4</sub>. The gaseous sample after the analysis is returned via a flow meter 4 and the blower to the main pipe 1.